시멘트 고화체 내 ^{94}Nb, ^{55}Fe, ^{90}Sr 및 $^{59/63}Ni$의 화학분리

이창헌*, 최광순, 안흥주, 지광용, 김원호
한국원자력연구소, 대전광역시, 유성구 덕진동 150 번지
nchlee1@kaeri.re.kr

1. 서론

국내 원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성폐기물의 효율적 관리를 위한 척도인자[1] 및 주기적 검증기술 개발에 관한 연구의 일환으로 시멘트 고화체에 함유되어 있는 ^{55}Fe, $^{59/63}Ni$, ^{90}Sr 및 ^{94}Nb 재고량 평가에 필요한 정량분석기술을 개발하였다. 이 핵종들은 핵연료 조사과정에서 생성되는 핵분열생성물과 재료물질로부터 생성되는 방사화 물질로서 낮은 에너지의 X-선과 베타선을 방출하므로 이들을 정량적으로 분석하기 위해서는 공존하는 핵종들 뿐만 아니라 방사성 폐기물의 매질원소(Na, K, Li, Cs, Ca, Mg, Al, Zn, Cr, Pb, Co, Cd, Mo, Mn, Cu, Ti, Zr 및 U)로부터 개별분리와 정제가 요구된다. 본 연구에서는 방사성 폐액의 발생량이 작고 분리과정이 단순하여 분석자의 방사선 피폭을 줄일 수 있도록 이온교환수지법[2] 추출 크로마토그래피로[3] 핵종을 개별분리한 후 개별 분리한 핵종의 정제뿐만 아니라 기체비례계수법으로 방사능을 계측할 때 필요한 radionuclide source를 만들기 위하여 침전법을 적용하는 일련의 분리절차를 확립하였다. 시멘트 고화체와 유사한 매질의 공인된 기준물질(Certified Reference Materials)이 없으므로 실제 시료를 분석하여 얻은 결과를 바탕으로 모의 시멘트 고화체 용해용액을 만들고 확립한 분리절차에 따라 Nb, Fe, Sr 및 Ni을 분리한 후 회수율과 상대표준편차로부터 분리기술의 적용성을 평가하였다.

2. 실험

2.1. 시멘트 고화체 용해

시멘트 고화체 시료를 용해시키고 (4.7 M HNO_3/7.2 M HCl) 용해용액의 산매질을 음이온 교환수지법에 의한 Nb의 선택적 분리에 적합한 12.07 M HCl으로 바꾸었다. 개방된 용해조건에서 확인된 불용성 물질은 주로 Al, Ca 및 Mg으로 구성되어 있었으며 완전히 용해시키지 않으면 Sr의 회수에 영향을 미쳤다. Teflon 재질의 내부 마개를 사용한 유리용기(50 mL, No. 1395, Pyrex)를 acid digestion bomb으로 사용하여 불용성 물질을 완전히 용해시켰다.

2.2. 분리관 준비

실험에 사용된 분리관은 폴리프로필렌 재질의 일회용 주사기 (1 mL, NSC사, Germany)로서 폴리에틸렌 재질의 필터 (Alltech, U.S.A.)를 끼워 사용하였다. 음·양이온교환수지는 Bio Rad사의 AG 1×8 및 AG 50W×8 (100~200 mesh)을 각각 사용하였으며 분리관의 수지 충전부피를 1 mL로 조절하였다. 추출 크로마토그래피 수지는 Eichrom사의 Sr-Spec 수지(100~150 μm)를 사용하였으며 1,000 mg 취하여 분리관 (안지름 6 mm)을 준비하였다.

2.3. Nb, Fe, Sr 및 Ni의 분리거동

Fe; 5 mg, Nb, Sr 및 Ni; 각각 100 μg 그리고 Cr, Pb, Mn, Al, Ti, Ca, Mg, Mn, Ce, Co, Cu, Cd; 각각 25 μg 함유되어 있는 12.07 M HCl (2 mL)의 혼합 금속이온 용액 일정량을 음이온교환수지 분리관에 넣고 개별 또는 군분리에 적합한 용리액을 통과시키면서 1 mL씩 분취한 다음 유도결합 플라스마 원자방출분광분석기 (ICP-AES, Jobin Yvon, JY 50P, France)로 분석하여 용출된 금속이온들의 양을 측정하였다. 이와 같은 방법으로 Sr은 Sr-Spec 분리관에서 그리고 Ni은 양이온교환수지 분리관에서 공존원소들과의 분리거동을 비교하였다.

2.4. Nb, Fe, Sr 및 Ni 회수율 측정 및 신뢰도 평가

시멘트 고화체를 ICP-AES로 분석하고 용해용액과 화학조성이 유사한 표 1의 비방사성 모의 시멘트 고화체 용해용액을 제조한 후 그림 1과 같은 분리절차에 따라 Nb, Fe, Sr 및 Ni 회수율을 3 회 측정하고 상대표준편차로부터 신뢰도를 평가하였다.

Table 1. Chemical components of a synthetic cement solution

Metal	Conc. mg/10 mL	Metal	Conc. mg/10 mL
Al	20	Li	0.3
B	9	Na	45
Ba	0.1	Mg	16
Ca	320	Mn	0.6
Ce	0.02	Nb	0.2
Co	0.01	Ni	0.1
Cr	0.04	Sr	0.15
Fe	10	Ti	0.8
K	8	Zn	0.3

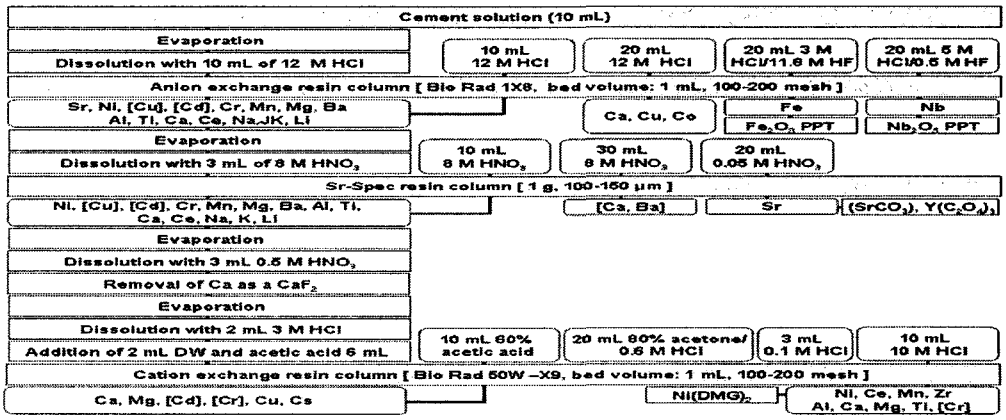

Fig. 1. Separation and purification procedure of ^{94}Nb, ^{55}Fe, ^{90}Sr 및 $^{59/63}$Ni in cement solid waste forms.

3. 결과 및 토의

연구대상 금속원소들의 분리, 회수율은 상대표준편차 0.9~1.5% 범위에서 96.1~100.9%로서 본 연구에서 확립한 분리기술을 시멘트 고화체 내 ^{94}Nb, ^{55}Fe, ^{90}Sr 및 $^{59/63}$Ni의 정량적 분리에 적용할 수 있다고 판단한다.

참고문헌

[1] J. E. Cline, J. R. Novce, L. J. Coe and K. W. Wright, Assay of long-lived radionuclides in low-level wastes from power reactors, NUREG/CR-4101, Division of waste management office of nuclear material safety and safeguards. U. S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, D.C. 2055, NRC FINB7356, 1985.

[2] H. F. Walton, R. D. Rocklin, Ion Exchange in Analytical Chemistry; CRC Press; Boca Raton, FL(1990).

[3] T. Braunt, G. Ghersini, Eds.; Extraction chromatography; Elseiver: Amsterdam(1975).